



(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : C08G 77/14, 77/20, 77/58, C08K 3/36,		A3	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/52964
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 21. Oktober 1999 (21.10.99)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/02396	(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
(22) Internationales Anmeldedatum: 8. April 1999 (08.04.99)	
(30) Prioritätsdaten: 198 16 136.0 9. April 1998 (09.04.98) DE	
(71) Anmelder (<i>für alle Bestimmungsstaaten ausser US</i>): INSTITUT FÜR NEUE MATERIALIEN GEM. GMBH [DE/DE]; Im Stadtwald, Gebäude 43a, D-66123 Saarbrücken (DE).	
(72) Erfinder; und	Veröffentlicht
(75) Erfinder/Anmelder (<i>nur für US</i>): ARPAC, Ertugrul [TR/TR]; Akdeniz Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, PK 510, 07200 Antalya (TR). JONSCHKER, Gerhard [DE/DE]; Grünewaldstrasse 12, D-66583 Spiesen-Elversberg (DE). SCHIRRA, Hermann [DE/DE]; Gräffstrasse 28, D-66113 Saarbrücken (DE). SCHMIDT, Helmut [DE/DE]; Im Königsfeld 29, D-66130 Saarbrücken-Güdingen (DE).	<i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>
(74) Anwalt: BARZ, Peter; Kaiserplatz 2, D-80803 München (DE).	(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 20. Januar 2000 (20.01.00)

(54) Title: NANOSTRUCTURED FORMS AND LAYERS AND METHOD FOR PRODUCING THEM USING STABLE WATER-SOLUBLE PRECURSORS

(54) Bezeichnung: NANOSTRUKTURIERTE FORMKÖRPER UND SCHICHTEN UND DEREN HERSTELLUNG ÜBER STABILE WASSERLÖSLICHE VORSTUFEN

(57) Abstract

The invention relates to a method for producing a composition for preparing nanostructured forms and layers, consisting of bringing an aqueous and/or alcoholic sol of a compound of an element selected from silicon and the main and sub-group metals into contact with species which have hydrolyzable alkoxy groups and which include at least one organically modified alkoxy silane or a precondensate derived therefrom, in conditions which lead to the (further) hydrolysis of the species and then removing any alcohol which has formed or which may optionally have been present originally. The invention is characterized in that enough alcohol is removed to leave a residual amount of not more than 20 wt.% in the composition.

(57) Zusammenfassung

Beschrieben wird ein Verfahren zur Herstellung einer Zusammensetzung für die Bereitstellung von nanostrukturierten Formkörpern und Schichten, umfassend die Kontaktierung eines wässrigen und/oder alkoholischen Sols einer Verbindung eines aus Silicium und den Haupt- und Nebengruppen-Metallen ausgewählten Elements mit über hydrolysierbare Alkoxygruppen verfügenden Spezies, die mindestens ein organisch modifiziertes Alkoxy silan oder ein davon abgeleitetes Vorkondensat einschliessen, unter Bedingungen, die zu einer (Weiter)hydrolyse der Spezies führen, und die anschliessende Entfernung von gebildetem und gegebenenfalls bereits ursprünglich vorhandenem Alkohol, dadurch gekennzeichnet, dass der Alkohol in einer solchen Menge entfernt wird, dass der Restalkohol-Gehalt in der Zusammensetzung nicht mehr als 20 Gew.-% ausmacht.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Républik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun			PT	Portugal		
CN	China	KR	Republik Korea	RO	Rumänien		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SG	Singapur		
EE	Estland	LR	Liberia				

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/02396

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C08G77/14 C08G77/20 C08G77/58 C08K3/36

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C08G C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category ^o	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 85-265863 XP002115369 & JP 60 177079 A (TOSHIBA), 11 September 1985 (1985-09-11) abstract ---	1,2,4-15
X	EP 0 486 469 A (PPG INDUSTRIES) 20 May 1992 (1992-05-20) example 2 ---	1,2,4-15
X	EP 0 263 428 A (PPG INDUSTRIES) 13 April 1988 (1988-04-13) example 7 ---	1,2,4-15
		-/-

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

^o Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

30 September 1999

Date of mailing of the international search report

10.12.1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

LENTZ, C

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/02396

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category ^a	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X, P	WO 98 40444 A (THE WALMAN OPTICAL CO) 17 September 1998 (1998-09-17) examples 1,2 -----	1,2,4-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 99/02396

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

See Additional Matter PCT/ISA/210

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1-15

Remark on Protest

The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.

No protest accompanied the payment of additional search fees.

1. Claims Nos. 1-15

Claims Nos. 1-14: Method for producing a composition, whereby sol is contacted with organoalkoxysilane and alcohol is subsequently removed.

Formally seen, second object, Claim No. 15:

Composition for preparing nanostructured forms and layers. (Obtained according to the method in accordance with any of Claims Nos. 1-14.) "Obtainable is, however, not imperative. A completely different composition can also be laid claim to. In addition, a possible use is also indicated "for the preparation", but is not imperative. "Suited for the preparation" should have been written. Thus, a "composition" is laid claim to without any limitation or characterization. Since this claim can be easily modified, it was regarded as part of the first object.

2. Claims Nos. 16-19

Claims Nos. 16-17: Method for producing nanostructured forms and substrates provided with nanostructured layers.

Claims Nos. 18-19: Nanostructured forms and substrates provided with nanostructured layers or the use of these.

Since Claim No. 18 can be easily modified, these two objects were regarded as only one.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/02396

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)			Publication date
JP 60177079	A 11-09-1985	NONE			
EP 486469	A 20-05-1992	AU 596702 B AU 7932087 A CN 1079972 A DE 3751856 D DE 3751856 T DE 3786864 A DE 3786864 T EP 0263428 A ES 2059338 T ES 2091955 T JP 6055925 B JP 63123838 A US 5231156 A YU 182387 A			10-05-1990 21-04-1988 29-12-1993 14-08-1996 13-02-1997 09-09-1993 24-02-1994 13-04-1988 16-11-1994 16-11-1996 27-07-1994 27-05-1988 27-07-1993 28-02-1989
EP 263428	A 13-04-1988	US 4753827 A US 4799963 A US 4754012 A US 4731264 A US 4814017 A AU 596702 B AU 7932087 A DE 3786864 A DE 3786864 T ES 2059338 T JP 6055925 B JP 63123838 A YU 182387 A CN 1079972 A DE 3751856 D DE 3751856 T EP 0486469 A ES 2091955 T US 5231156 A			28-06-1988 24-01-1989 28-06-1988 15-03-1988 21-03-1989 10-05-1990 21-04-1988 09-09-1993 24-02-1994 16-11-1994 27-07-1994 27-05-1988 28-02-1989 29-12-1993 14-08-1996 13-02-1997 20-05-1992 16-11-1996 27-07-1993
WO 9840444	A 17-09-1998	US 5789082 A AU 6690098 A			04-08-1998 29-09-1998

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT, EP 99/02396

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
 IPK 6 C08G77/14 C08G77/20 C08G77/58 C08K3/36

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
 IPK 6 C08G C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 85-265863 XP002115369 & JP 60 177079 A (TOSHIBA), 11. September 1985 (1985-09-11) Zusammenfassung ---	1,2,4-15
X	EP 0 486 469 A (PPG INDUSTRIES) 20. Mai 1992 (1992-05-20) Beispiel 2 ---	1,2,4-15
X	EP 0 263 428 A (PPG INDUSTRIES) 13. April 1988 (1988-04-13) Beispiel 7 ---	1,2,4-15

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

- * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :
- *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

- *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist
- *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden
- *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist
- *&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 30. September 1999	Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 10.12.1999
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patenttaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter LENTZ, C

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/02396

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X, P	WO 98 40444 A (THE WALMAN OPTICAL CO) 17. September 1998 (1998-09-17) Beispiele 1,2 -----	1,2,4-15

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/02396

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. Ansprüche Nr. weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
2. Ansprüche Nr. weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3. Ansprüche Nr. weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

sieh weitere angaben PCT/ISA/210

1. Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4. Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

1-15

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.

Die Zahlung zusätzlicher Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

1. Ansprüche: 1-15

Ansprüchen 1-14: Verfahren zur Herstellung einer Zusammensetzung wobei Sol kontaktiert wird mit Organoalkoxysilan, anschliessend wird Alkohol entfernt.

Formal gesehen, zweiter Gegenstand, Anspruch 15: Zusammensetzung für die Bereitstellung von nanostrukturierten Formkörpern und Schichten. (Erhältlich gemäss dem Verfahren nach irgendeinem der Ansprüche 1-14. "Erhältlich ist aber nicht zwingend, es kann auch eine völlig andere Zusammensetzung beansprucht werden. Ausserdem bezeichnet "für die Bereitstellung" auch eine mögliche Verwendung, ist aber nicht zwingend. Es sollte "geeignet für die Bereitstellung" geschrieben werden. Somit wird eine "Zusammensetzung" beansprucht, ohne jede Begrenzung oder Karakterisierung. Da dieser Anspruch einfach geändert werden kann, wurde er jedoch als Teil der ersten Gegenstand betrachtet.

2. Ansprüche: 16-19

Ansprüche 16-17: Verfahren zur Herstellung von nanostrukturierten Formkörpern und mit nanostrukturierten Schichten versehenen Substraten.

Ansprüche 18-19: Nanostrukturierte Formkörper und mit nanostrukturierten Schichten versehenen Substrate bzw. die Verwendung dieser.

Da Anspruch 18 einfach geändert werden kann, wurde diese zwei Gegenstände als nur einen betrachtet.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT, EP 99/02396

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
JP 60177079	A	11-09-1985	KEINE		
EP 486469	A	20-05-1992	AU 596702 B		10-05-1990
			AU 7932087 A		21-04-1988
			CN 1079972 A		29-12-1993
			DE 3751856 D		14-08-1996
			DE 3751856 T		13-02-1997
			DE 3786864 A		09-09-1993
			DE 3786864 T		24-02-1994
			EP 0263428 A		13-04-1988
			ES 2059338 T		16-11-1994
			ES 2091955 T		16-11-1996
			JP 6055925 B		27-07-1994
			JP 63123838 A		27-05-1988
			US 5231156 A		27-07-1993
			YU 182387 A		28-02-1989
EP 263428	A	13-04-1988	US 4753827 A		28-06-1988
			US 4799963 A		24-01-1989
			US 4754012 A		28-06-1988
			US 4731264 A		15-03-1988
			US 4814017 A		21-03-1989
			AU 596702 B		10-05-1990
			AU 7932087 A		21-04-1988
			DE 3786864 A		09-09-1993
			DE 3786864 T		24-02-1994
			ES 2059338 T		16-11-1994
			JP 6055925 B		27-07-1994
			JP 63123838 A		27-05-1988
			YU 182387 A		28-02-1989
			CN 1079972 A		29-12-1993
			DE 3751856 D		14-08-1996
			DE 3751856 T		13-02-1997
			EP 0486469 A		20-05-1992
			ES 2091955 T		16-11-1996
			US 5231156 A		27-07-1993
WO 9840444	A	17-09-1998	US 5789082 A		04-08-1998
			AU 6690098 A		29-09-1998